

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

5n

Absender: MIT DER INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNG BEAUFTRAGTE BEHÖRDE

An:

DEGUSSA AG
Patente und Marken
Standort Wolfgang
Postfach 13 45
D-63403 Hanau
ALLEMAGNE

Eingang bei
Intellectual Property
Management

2 5. OKT. 2001

Standort Wolfgang

PCT

MITTEILUNG ÜBER DIE ÜBERSENDUNG
DES INTERNATIONALEN VORLÄUFIGEN
PRÜFUNGSBERICHTS
(Regel 71.1 PCT)

Absendedatum
(Tag/Monat/Jahr) 24.10.2001

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts
990138 AO

WICHTIGE MITTEILUNG

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP00/06301

Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr)
05/07/2000

Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)
24/08/1999

Anmelder
DEGUSSA AG et al.

1. Dem Anmelder wird mitgeteilt, daß ihm die mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde hiermit den zu der internationalen Anmeldung erstellten internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen, übermittelt.
2. Eine Kopie des Berichts wird - gegebenenfalls mit den dazugehörigen Anlagen - dem Internationalen Büro zur Weiterleitung an alle ausgewählten Ämter übermittelt.
3. Auf Wunsch eines ausgewählten Amtes wird das Internationale Büro eine Übersetzung des Berichts (jedoch nicht der Anlagen) ins Englische anfertigen und diesem Amt übermitteln.

4. ERINNERUNG

Zum Eintritt in die nationale Phase hat der Anmelder vor jedem ausgewählten Amt innerhalb von 30 Monaten ab dem Prioritätsdatum (oder in manchen Ämtern noch später) bestimmte Handlungen (Einreichung von Übersetzungen und Entrichtung nationaler Gebühren) vorzunehmen (Artikel 39 (1)) (siehe auch die durch das Internationale Büro im Formblatt PCT/IB/301 übermittelte Information).

Ist einem ausgewählten Amt eine Übersetzung der internationalen Anmeldung zu übermitteln, so muß diese Übersetzung auch Übersetzungen aller Anlagen zum internationalen vorläufigen Prüfungsbericht enthalten. Es ist Aufgabe des Anmelders, solche Übersetzungen anzufertigen und den betroffenen ausgewählten Ämtern direkt zuzuleiten.

Weitere Einzelheiten zu den maßgebenden Fristen und Erfordernissen der ausgewählten Ämter sind Band II des PCT-Leitfadens für Anmelder zu entnehmen.

Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde



Europäisches Patentamt
D-80298 München
Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d
Fax: +49 89 2399 - 4465

Bevollmächtigter Bediensteter

Ferro Vasconcelos, M

Tel. +49 89 2399-7085



8041

VERTRAG ÜBER INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 26 OCT 2001

WIPO PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 990138 AO	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/06301	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 05/07/2000	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 24/08/1999
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01J23/96		
Anmelder DEGUSSA AG et al.		

- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 4 Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 10/11/2000	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 24.10.2001
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Schwaller, J-M Tel. Nr. +49 89 2399 8351 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):
Beschreibung, Seiten:

1,2,5-8 ursprüngliche Fassung

3,4,4a eingegangen am 26/06/2001 mit Schreiben vom 22/06/2001

Patentansprüche, Nr.:

3-6 ursprüngliche Fassung

1,2 eingegangen am 26/06/2001 mit Schreiben vom 22/06/2001

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/06301

- ☐ Beschreibung, Seiten:
☐ Ansprüche, Nr.:
☐ Zeichnungen, Blatt:

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen).

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-6
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-6
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-6
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

GB-A-1090294 und **GB-A-922021**, die als nächstliegender Stand der Technik angesehen werden, offenbaren (vgl. Ansprüche) ein Verfahren zur Regenerierung eines Katalysators enthaltend Platingruppenmetalle, von dem sich der Gegenstand des Anspruchs 1 **dadurch unterscheidet**,

daß die Fällung in Gegenwart einer mindestens stöchiometrischen Menge eines Chelatkomplexbildners für ein oder mehrere Metalle aus der Reihe der Metalle der Gruppen 2a, 3a, 4a des Periodensystems sowie der Übergangselemente ohne Elemente der Platingruppe durchgeführt wird, und dabei mindestens eines der anwesenden Nicht-Platingruppenmetalle in Lösung gehalten wird.

Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist somit **neu** (Artikel 33 (2) PCT).

Durch dieses Verfahren werden Katalysatoren mit höherer Aktivität erhalten als durch eine Fällung in Abwesenheit eines Chelatkomplexbildners, so daß der beanspruchten Gegenstand auch auf **einer erfinderischen Tätigkeit beruht** (Artikel 33(3) PCT).

Die Ansprüche 2-6 sind vom Anspruch 1 abhängig und erfüllen damit ebenfalls die Erfordernisse des PCT in bezug auf Neuheit und erfinderische Tätigkeit.

Filtrationsschritt obligatorisch an, um den Träger abzutrennen - siehe GB 1,090,294. Im Falle von trägerfreien Katalysatoren ist eine Filtration nur bei Bedarf erforderlich. Die erhaltene Edelmetallchloridlösung wird

5 anschließend zur Herstellung des Katalysators verwendet, wobei das Edelmetall in Anwesenheit oder Abwesenheit eines Trägermaterials mittels eines Reduktionsmittels ausgefällt wird. Während der Ausfällung wird üblicherweise der pH-Wert aus dem stark sauren in das mäßig basische Gebiet

10 verschoben. Bekannte Reduktionsmittel für die Ausfällung des Edelmetalls sind Formaldehyd, Ameisensäure und elementarer Wasserstoff. Beispielhaft wird auf das GB-Patent 922,021 verwiesen, in dem das zuvor skizzierte Verfahren unter Einsatz von HCl/Cl_2 zur Auflösung von

15 Palladium aus einem palladiumhaltigen Trägerkatalysator und Verwendung von Formaldehyd als Reduktionsmittel zum Ausfällen von Palladium in Gegenwart eines frischen Trägermaterials beschrieben wird. Unter den Fällbedingungen werden die üblicherweise mit dem Katalysator eingebrachten

20 Nicht-Platingruppenmetalle, wie Eisen, Chrom und Nickel, in Form eines Hydroxids und/oder Carbonats mit dem Palladium copräzipiert.

Zur Abtrennung der Nicht-Platingruppenmetalle aus der Platingruppenmetallchlorid enthaltenden wässrigen Lösung

25 wurde bisher das Platingruppenmetall durch Zugabe eines elektropositiveren Metalls als das auszufällende Platingruppenmetall, wie insbesondere Eisen oder Zink, ausgefällt. Das so ausgefällte Platingruppenmetall wird aus der Lösung abgetrennt. Da die katalytische Aktivität des so

30 gewonnenen Edelmetalls ungenügend ist, muss sich an diesen ersten Fällungsschritt (Zementation) eine erneute Auflösung des Platingruppenmetalls und Ausfällung unter Bedingungen der Entstehung eines sehr feinteiligen und damit aktiven Katalysators erfolgen. Das zweimalige Auflösen und

35 Ausfällen des Platingruppenmetalls ist technisch aufwendig,

so dass die Fachwelt an einem einfacheren Verfahren interessiert ist.

Gefunden wurde ein Verfahren zur Regenerierung eines trägergebundenen oder trägerfreien Suspensionskatalysators
5 auf der Basis mindestens eines Platingruppenmetalls, umfassend Auflösen der anwesenden Platingruppenmetalle in wässriger HCl, unter Verwendung eines Oxidationsmittels für Platingruppenmetalle, Filtration unlöslicher Bestandteile und Ausfällung der Platingruppenmetalle mittels eines
10 Reduktionsmittels bei einem pH-Wert im Bereich von 2 bis 10, das dadurch gekennzeichnet ist, dass man die Fällung in Gegenwart einer mindestens stöchiometrischer Menge eines Chelatkomplexbildners für ein oder mehrere Metalle aus der Reihe der Metalle der Gruppen 2a, 3a, 4a des
15 Periodensystems sowie der Übergangselemente ohne Elemente der Platingruppe durchführt und dabei komplexierfähige Nicht-Platingruppenmetalle ganz oder teilweise in Lösung hält.

Das erfindungsgemäße Verfahren richtet sich vorzugsweise
20 auf solche Suspensionskatalysatoren, welche als wirksame Komponenten mindestens 50 Gew.-% Palladium, weniger als 50 Gew.-% eines oder mehrerer anderer Platingruppenmetalle und 0,001 bis 10 Gew.-%, bevorzugt 0,01 bis 10 Gew.-% Nicht-Platingruppenmetalle, welche auch in Form von Verbindungen
25 vorliegen können, enthält. Besonders bevorzugt richtet sich die Erfindung auf die Regenerierung von Platingruppenmetall-Mohren, insbesondere Palladium-Mohr, wobei dieser Begriff stets auch die Anwesenheit anderer Platingruppenmetalle und in geringem Umfang auch anderer
30 modifizierender Metalle umfasst.

Durch die Anwesenheit eines Chelatkomplexbildners während der Ausfällung des einen oder der mehreren
Platingruppenmetalle werden komplexierfähige Nicht-Platingruppenmetalle ganz oder teilweise in Lösung
35 gehalten, so dass der Gehalt an diesen Metallen im

4a

ausgefällten Platingruppenmetall-Suspensionskatalysator vermindert wird. Der Chelatkomplexbildner wird hierbei in wirksamer Menge eingesetzt, insbesondere in mindestens stöchiometrischer und vorzugsweise in überstöchiometrischer

5 Menge, bezogen auf die abzutrennenden Metalle.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Regenerierung eines trägergebundenen oder
trägerfreien Suspensionskatalysators auf der Basis
mindestens eines Platingruppenmetalls, umfassend
5 Auflösen der anwesenden Platingruppenmetalle in
wäßriger HCl, unter Verwendung eines Oxidationsmittels
für Platingruppenmetalle, Filtration unlöslicher
Bestandteile und Ausfällung der Platingruppenmetalle
mittels eines Reduktionsmittels bei einem pH-Wert im
10 Bereich von 2 bis 10,
dadurch gekennzeichnet,
dass man die Fällung in Gegenwart einer mindestens
stöchiometrischen Menge eines Chelatkomplexbildners für
ein oder mehrere Metalle aus der Reihe der Metalle der
15 Gruppen 2a, 3a, 4a des Periodensystems sowie der
Übergangselemente ohne Elemente der Platingruppe
durchführt und dabei komplexierfähige Nicht-
Platingruppenmetalle ganz oder teilweise in Lösung
hält.
- 20 2. Verfahren nach Anspruch 1,
dadurch gekennzeichnet,
dass ein trägerfreier Katalysator auf der Basis von
mindestens 50 Gew.-% Palladium, 0 bis weniger als 50
Gew.-% eines oder mehrerer anderer Platingruppenmetalle
25 und 0,001 % bis 10 Gew.-% mindestens eines
komplexierfähigen Metalls aus der Reihe der Gruppen 2a,
3a, 4a des Periodensystems sowie der Übergangselemente
ohne Elemente der Platingruppe regeneriert wird, indem
man die Fällung in Gegenwart einer überstöchiometrischen
30 Menge eines Chelatkomplexbildners durchführt.

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Translation

10/030224

Applicant's or agent's file reference 990138 AO	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP00/06301	International filing date (day/month/year) 05 July 2000 (05.07.00)	Priority date (day/month/year) 24 August 1999 (24.08.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B01J 23/96		
Applicant DEGUSSA AG		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 4 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 4 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 10 November 2000 (10.11.00)	Date of completion of this report 24 October 2001 (24.10.2001)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP00/06301

I. Basis of the report

1. This report has been drawn on the basis of *(Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to the report since they do not contain amendments.)*:

- ☐ the international application as originally filed.
- ☒ the description, pages 1,2,5-8, as originally filed,
 pages _____, filed with the demand,
 pages 3,4,4a, filed with the letter of 22 June 2001 (22.06.2001),
 pages _____, filed with the letter of _____.
- ☒ the claims, Nos. 3-6, as originally filed,
 Nos. _____, as amended under Article 19,
 Nos. _____, filed with the demand,
 Nos. 1,2, filed with the letter of 22 June 2001 (22.06.2001),
 Nos. _____, filed with the letter of _____.
- ☐ the drawings, sheets/fig _____, as originally filed,
 sheets/fig _____, filed with the demand,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____,
 sheets/fig _____, filed with the letter of _____.

2. The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

3. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

4. Additional observations, if necessary:

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/EP 00/06301

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

GB-A-1 090 294 and GB-A-0 922 021, which are considered the closest prior art, disclose (see the claims) a method for regenerating a catalyst that contains platinum group metals from which the subject matter of Claim 1 **differs in that**

precipitation is carried out in the presence of an at least stoichiometric amount of a chelate complexing agent of one or more metals of the series of metals of groups 2a, 3a and 4a of the periodic system and of the transition elements, except for the elements of the platinum group, and that during precipitation at least one of the non-platinum group metals present is held in solution.

The subject matter of Claim 1 is therefore **novel** (PCT Article 33(2)).

This method produces catalysts having higher activity than when precipitation is carried out in the absence of a chelate complexing agent, and therefore the claimed subject matter also **involves an inventive step** (PCT Article 33(3)).

Claims 2-6 are dependent on Claim 1 and therefore likewise meet the PCT requirements for novelty and inventive step.